

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

DEUTSCHE DEMOKRATISCHE REPUBLIK



PATENTSCHRIFT

(12) Wirtschaftspatent

(19) DD (11) 246 257 A1

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

4(51) B 01 J 19/00

AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21) WP B 01 J / 286 337 5 (22) 21.01.86 (44) 03.06.87

(71) Akademie der Wissenschaften der DDR, 1080 Berlin, Otto-Nuschke-Straße 22/23, DD
(72) Löhder, Werner, Dr. Dipl.-Ing.; Bergann, Ludwig, Dr. Dipl.-Ing., DD

(54) Verfahrenstechnische Mikroapparaturen und Verfahren zu ihrer Herstellung

(57) Die Erfindung ist dort anwendbar, wo miniaturisierte verfahrenstechnische Apparaturen und Systeme, wie z. B. als Wärmeübertrager, Verdampfer, Adsorber, katalytische Reaktionsgefäße erforderlich sind. Ziel und Aufgabe der Erfindung ist es, miniaturisierte verfahrenstechnische Apparaturen oder verfahrenstechnische Mikrosysteme zu schaffen und ein Verfahren zu deren Herstellung anzugeben, wobei die Herstellung einfach sein soll, auch nicht ätzfähige Materialien einsetzbar sind und eine Steigerung des verfahrenstechnischen Wirkungsgrades erreicht wird. Dies wird erfindungsgemäß dadurch erreicht, daß die verfahrenstechnische Mikroapparatur einzelne Funktionsebenen aufweist, die in einem Stapel von Substratplättchen untergebracht und funktionsmäßig durch Flußstromöffnungen bzw. Energieübertragungswände miteinander verbunden sind, wobei die in den einzelnen Substratplättchen eingearbeiteten Vertiefungen in ihren Abmessungen, ihrer Form- und Oberflächengestaltung sowie ihren Wirkvolumina der jeweiligen Funktionsebene der verfahrenstechnischen Mikroapparatur entsprechen.

ISSN 0433-6461

2 Seiten

Erfindungsanspruch:

1. Verfahrenstechnische Mikroapparatur, die aus einem Stapel von einzelnen Substratplättchen mit eingearbeiteten Vertiefungen besteht, wobei die Substratplättchen zur Bildung geschlossener Hohlräume abgedeckt sind, dadurch gekennzeichnet, daß die verfahrenstechnische Mikroapparatur einzelne Funktionsebenen aufweist, die in dem Stapel von Substratplättchen untergebracht und funktionsmäßig durch Flußstromöffnungen bzw. Energieübertragungswände miteinander verbunden sind, wobei die in den einzelnen Substratplättchen eingearbeiteten Vertiefungen in ihren Abmessungen, ihrer Form- und Oberflächengestaltung sowie ihren Wirkvolumina der jeweiligen Funktionsebene der verfahrenstechnischen Mikroapparatur entsprechen.
2. Verfahren zur Herstellung von verfahrenstechnischen Mikroapparaturen nach Punkt 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Substratplättchen entsprechend der für die jeweilige Funktionsebene erforderlichen Wirkvolumina mit einer Oberflächenstruktur versehen werden, anschließend gestapelt und gas- bzw. flüssigkeitsdicht miteinander verbunden werden und dann an den jeweils äußeren Substratplättchen die erforderlichen Anschlüsse angebracht werden.
3. Verfahren nach Punkt 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Struktur einseitig in den Substratplättchen erzeugt wird.
4. Verfahren nach Punkt 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Struktur beidseitig in den Substratplättchen erzeugt wird.
5. Verfahren nach Punkt 2 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß gegenüberliegende Seiten von Substratplättchen mit einer spiegelbildlichen Struktur versehen werden.
6. Verfahren nach Punkt 2 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß gegenüberliegende Seiten von Substratplättchen mit verschiedenen Strukturen versehen werden.
7. Verfahren nach Punkt 2 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Erzeugung der Strukturen in den Substratplättchen durch Verdrängen des zu entfernenden Substratmaterials, beispielsweise mittels eines Preßwerkzeuges, erfolgt.
8. Verfahren nach Punkt 2 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Erzeugung der Strukturen in den Substratplättchen durch mechanisches Herausarbeiten des zu entfernenden Substratmaterials, beispielsweise mittels eines Fräswerkzeuges, erfolgt.
9. Verfahren nach Punkt 2 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Erzeugung der Strukturen in den Substratplättchen auf elektroerosivem Weg erfolgt.
10. Verfahren nach Punkt 2 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Erzeugung der Strukturen in den Substratplättchen durch chemisches Herausarbeiten des zu entfernenden Substratmaterials, beispielsweise durch einen Ätzvorgang erfolgt.
11. Verfahren nach Punkt 2 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Erzeugung der Strukturen auf den Substratplättchen durch galvanisches Aufwachsen von metallischen Begrenzungswänden auf metallischen Strukturmustern erfolgt, die auf den Substratplättchen aufgebracht worden sind.
12. Verfahren nach Punkt 7 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere der einzelnen Verfahrensschritte zur Erzeugung von Strukturen in den Substratplättchen nacheinander oder kombiniert durchgeführt werden.
13. Verfahren nach Punkt 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß alle Substratplättchen aus einer Materialart bestehen.
14. Verfahren nach Punkt 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß Substratplättchen in einer verfahrenstechnischen Mikroapparatur aus unterschiedlichen Materialarten bestehen.
15. Verfahren nach Punkt 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß einzelne oder alle Substratplättchen mit einem anderen Material oder verschiedenen Materialien teilweise oder vollständig beschichtet sind.
16. Verfahren nach Punkt 1 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß die Materialien (Substrat und/oder aufgebrachtes Material) bezüglich der durchströmenden Medien chemisch oder physikalisch aktiv sind und mit denselben in Wechselwirkung stehen.
17. Verfahren nach Punkt 1 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß bezüglich der durchströmenden Medien chemisch oder physikalisch aktive Substanzen in dünner Schicht in dem verfahrenstechnischen Mikrosystem aufgebracht werden.

Hierzu 3 Seiten Zeichnungen

Anwendungsbereich der Erfindung

Die Erfindung findet in der Verfahrenstechnik dort Anwendung, wo die zu behandelnden Stoffe nur in geringen Mengen zur Verfügung stehen oder diese Stoffe sehr teuer sind, so daß man sich große Totvolumina in den verfahrenstechnischen Apparaturen nicht leisten kann und daher miniaturisierte verfahrenstechnische Apparaturen und Systeme notwendig sind. Solche miniaturisierten verfahrenstechnischen Apparaturen können unter anderem Wärmeübertrager, Verdampfer, Kondensatoren, Adsorber, gaschromatische Säulen, Trennanlagen oder katalytische Reaktionsgefäßse sein. Auch sind ganze verfahrenstechnische Systeme aus diesen Apparaturen mit Verbindungskanälen und Steiggliedern und möglicherweise integrierter Mikrosteuerungs- oder -regelungselektronik einschließlich Sensoren denkbar. Die Erfindung findet auch Anwendung in der Herstellung solcher miniaturisierter verfahrenstechnischer Apparate und Systeme.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Aus der Tieftemperaturerzeugung mittels miniaturisierter Systeme ist ein Herstellungsverfahren bekannt, welches die Ätztechnik auf der Basis von Fotolithografie verwendet (DE-OS 3010962, F25 B, 9/02). Hierbei wird ein aufgabenspezifisches Mäandermuster in eine Glasplatte geätzt, diese mit einer zweiten Platte abgedeckt und dadurch ein entsprechendes Hohlräumsystem erzeugt.

Nachteilig bei diesem Herstellungsverfahren sind einerseits die Beschränkung auf ätzfähige Materialien und andererseits die für Ätzverfahren typischen Effekte, wie geringes Tiefe/Breite-Verhältnis der Ätzgräben und besonders die Unterätzungserscheinungen der Ätzmaske.

Diese Effekte engen die freie Wahl der räumlichen Dimensionen der herzustellenden Anordnungen erheblich ein. Änderungen der Tiefe der Ätzgräben auf einer Platte sind, wenn überhaupt, nur mit hohem Aufwand realisierbar.

Durch die vom Ätzverfahren bedingten Begrenzungen in der räumlichen Dimensionswahl für die miniaturisierten Apparaturen und Systeme werden prozeßtechnische Wirkungsgrade verschlechtert.

Ziel der Erfindung

Ziel der Erfindung ist es, verfahrenstechnische Mikroapparaturen und ein einfaches Herstellungsverfahren für dieselben verfügbar zu haben; so daß eine exakte Reproduzierbarkeit, die Verarbeitung auch von nicht ätzfähigen oder kombinierten Materialien und gleichzeitig eine Steigerung des verfahrenstechnischen Wirkungsgrades durch bessere Realisierung der optimalen Prozeßparameter und eine Massenproduktion ermöglicht wird.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, miniaturisierte verfahrenstechnische Apparaturen oder verfahrenstechnische Mikrosysteme zu schaffen und ein Verfahren zu deren Herstellung anzugeben.

Diese Aufgabe wird erfahrungsgemäß dadurch gelöst, daß die verfahrenstechnische Mikroapparatur bzw. das verfahrenstechnische Mikrosystem in apparative Funktionsebenen aufgeteilt wird. Jede Funktionsebene wird als eingearbeitete Struktur in mindestens einem Substratplättchen untergebracht.

Bei mehreren Funktionsebenen werden mehrere Plättchen verwendet, wobei die Plättchenzahl größer sein kann als die Zahl der Funktionsebenen. Die Substratplättchen werden aufeinander gestapelt und mittels in die Plättchen eingebrachter Durchbrüche verfahrensfunktionsmäßig verbunden. Nach der Stapelung werden die nach außen noch offenliegenden verfahrenstechnischen Vertiefungen durch Deckplättchen bis auf die Stoffzufuhr- und Stoffabfuhröffnungen verschlossen und der gesamte Plättchenstapel gas- bzw. flüssigkeitsdicht miteinander verbunden. Durch diese Stapelung lassen sich auch komplexe verfahrenstechnische Mikrosysteme kompakt realisieren.

Für die Anordnung der Struktur einer Funktionsebene der verfahrenstechnischen Mikroapparatur auf Substratplättchen gibt es mehrere Möglichkeiten.

Es kann einmal die Struktur einer Funktionsebene einseitig auf einem Substratplättchen erzeugt und mit einem planaren Plättchen verschlossen werden.

Andererseits ist auch möglich, die Strukturmuster zweier Funktionsebenen auf einem Substratplättchen so unterzubringen, indem auf jeder Seite des Substratplättchens die Struktur einer Funktionsebene abgebildet wird.

Besonders bei größeren Strukturteufen einer Funktionsebene kann es vorteilhaft sein, die Struktur auf die einander gegenüberliegenden Seiten von zwei Substratplättchen so aufzuteilen, daß zusammengesetzt die Struktur dieser Funktionsebene erhalten wird.

Diese Struktur kann spiegelbildlich, aber auch asymmetrisch aufgeteilt werden.

Die Erzeugung der vertieften Strukturen in den Substratplättchen kann durch Verdrängen des zu entfernenden Substratmaterials, beispielsweise durch ein Preß- oder Prägewerkzeug erfolgen.

Es ist auch möglich, die Strukturen in dem Substratplättchen durch mechanisches Herausarbeiten mittels eines Schneidwerkzeuges, beispielsweise eines Fräswerkzeuges oder eines Stichels zu erzeugen.

Ein anderer Weg zur Erzeugung der Strukturen in den Substratplättchen ist die elektroerosive Herausarbeitung des zu entfernenden Substratmaterials.

Auch kann die Erzeugung der Strukturen in den Substratplättchen durch chemisches Entfernen des störenden Substratmaterials, beispielsweise durch Ätzen erfolgen, sofern das Substratmaterial ätzfähig ist.

Bei einer anderen Methode zur Strukturherstellung wäre zuerst auf das Substratplättchen ein dünne elektrisch leitfähige Schicht aufzubringen, in der mittels fotolithografischer Verfahren das Strukturgrundmuster eingeätzt wird. Anschließend wird durch galvanisches Aufwachsen die Struktur erhöht, so daß metallische Begrenzungswände entstehen.

Es ist auch denkbar, einzelne der aufgeführten Herstellungsverfahren für die beschriebenen Strukturen nacheinander durchzuführen, um damit Strukturen zu erhalten, die mit einem dieser Herstellungsverfahren allein nicht erreichbar oder unökonomisch herstellbar sind. Dies könnte beispielsweise bei platierten Substratwerkstoffen der Fall sein.

Außerdem kann durch die Wahl besonderer Substratmaterialien des Mikroapparatesystems oder Beschichtung bzw. Formierung seiner inneren Oberfläche eine chemische oder physikalische Aktivität des Systems erreicht werden. Das Mikroapparatesystem ist so beispielsweise als katalytisches Reaktionsgefäß einsetzbar. Dabei besteht auch die Möglichkeit, für einen Einsatz als katalytisches Reaktionsgefäß die vorhandenen Hohlräume des Mikroapparatesystems mit porösem Katalysatormaterial zu füllen.

Nachfolgend soll die Erfindung an Ausführungsbeispielen näher beschrieben werden.

Als erstes Beispiel wird ein miniaturisierter Kreuzgegenstromverdampfer erläutert (Fig. 1 a bis 1 c).

Das zu verdampfende Medium 1 strömt dem Wärmeträger 2 im Kreuzgegenstrom entgegen, wird dabei bis zur Verdampfungstemperatur erwärmt und anschließend verdampft und in einem Dampfsammelgefäß 3 vor der Weiterbehandlung vorübergehend gespeichert.

Dieser Kreuzgegenstromverdampfer besteht aus einem Glasplättchen 4, in dem sich auf der Oberseite das Struktursystem für das zu verdampfende Medium 1 (s. Fig. 1 b) und auf der Unterseite sich das Vertiefungssystem für den Wärmeträger 2 befinden (s. Fig. 1 c). Beide Vertiefungssysteme werden durch schlecht wärmeleitende Deckplättchen 5, z. B. aus Kunststoff, verschlossen.

Die beiden Vertiefungssysteme werden dadurch hergestellt, daß in das vorgewärmte Glasplättchen 4 ein Preßwerkzeug, das die gewünschten Vertiefungen als erhabene Form enthält, gedrückt wird. Anschließend wird der Verformungsgrat auf dem Glasplättchen 4 durch Schleifen entfernt. Durch Aufbringen der beiden Deckplättchen 5 mit nachfolgendem Verbinden der sich berührenden Plättchenseiten und das Anbringen der Zu- und Abflußleitungen ist die Herstellung abgeschlossen. Eine andere mögliche Ausführungsform des Kreuzgegenstromverdampfers wird in Fig. 2 gezeigt. Das Glasplättchen 6 enthält das Struktursystem für das zu verdampfende Medium 1 und ist so angeordnet, daß die Vertiefungen der Cu-Folie 7 zugewandt sind. Auf der anderen Seite der Cu-Folie 7 ist ein weiteres Glasplättchen 8 mit dem eingepreßten Struktursystem für den Wärmeträger so angeordnet, daß auch diese Strukturen der Cu-Folie 7 zugewandt sind. Der Wärmedurchgang vom Wärmeträger 2 an das zu verdampfende Medium 1 erfolgt durch die Cu-Folie 7.

Zwei Deckplättchen 5 vermindern die Wärmeverluste nach außen. Auch dieser Verdampfer ist in ähnlicher Weise hergestellt wie der in Fig. 1 a dargestellte.

Eine weitere mögliche Ausführungsform eines Verdampfers ist in Fig. 3 dargestellt.

Ein Glasplättchen 4 enthält das Vertiefungssystem für das zu verdampfende Medium 1. Dieses Vertiefungssystem ist durch ein dünnes Deckplättchen 9 verschlossen, auf dessen Rückseite ein elektrisches Heizsystem 10 aufgedampft ist, das wiederum durch ein wärmeisolierendes Deckplättchen 5 abgedeckt ist. Ein weiteres Ausführungsbeispiel betrifft ein katalytisches Reaktionsgefäß zur Anwendung in der chemischen Mikroanalytik. Hierbei besteht die Problematik in der geringen Menge des zur Verfügung stehenden Untersuchungsmaterials. Die erfindungsgemäße Mikroapparatur besitzt bei kleinem wirksamen Volumen eine relativ große innere Oberfläche. Diese Eigenschaft läßt sie als Anordnung zur katalytischen Umwandlung spezieller Produktklassen geeignet erscheinen, beispielsweise zur Ermittlung des Verhältnisses von Paraffinen (Alkanen) zu Olefinen (Alkenen) in Mischungen mittels eines Hydrierkatalysators und nachfolgender gaschromatographischer Untersuchung. Zu diesem Zweck muß die innere Oberfläche der Mikroapparatur in der Lage sein, die Katalysatorsubstanz zu fixieren.

Aluminiumoxid ist dazu sehr gut geeignet und vergrößert außerdem durch seine Porosität die wirksame Oberfläche beträchtlich. Darauf aufbauend kann aus der erfindungsgemäßen Mikroapparatur in den folgenden Schritten eine Katalysatoranordnung für die Mikroanalytik realisiert werden:

Das beabsichtigte Strukturmuster wird beispielsweise mit Hilfe eines Preßwerkzeuges in Aluminium geprägt, wobei die Hohlraumstruktur ein- oder mehrkanalig ausgeführt werden kann. Anschließend erfolgt anodische Oxidation des Leitungssystems und darauf der Verschluß durch ein Gegenplättchen bzw. durch eine spiegelbildliche Gegenstruktur. Diese beiden Schritte können auch in umgekehrter Reihenfolge durchgeführt werden. Der Katalysator, z. B. Platin, wird nun aus der Lösung im Kanalsystem niedergeschlagen und vom Aluminiumoxid adsorbiert. Nach Anschluß geeigneter Verbindungsleitungen ist der Mikrokatalysator einsatzfertig.

In Fig. 4 wird als ein Beispiel für die vielfältigen Möglichkeiten zur Stapelung von Funktionsebenen, die praktisch einzelne Verfahrensschritte darstellen, eine mehrstufige Trenn- und Reaktionsanlage in Mikroausführung gemäß der Erfindung schematisch dargestellt. Die verfahrenstechnische Mikroanlage besteht aus drei Dialysestufen 11, einer Heizstufe 12, einer Reaktionsstufe 13 und einer Kühlstufe 14.

Zwischen den Verfahrensstufen, deren Betriebstemperaturen größere Unterschiede im Vergleich zu benachbarten Verfahrensstufen aufweisen, sind Wärmeisolationsschichten 15 angeordnet. Eine Dialysestufe besteht im wesentlichen aus 2 Substratplättchen 16, in denen nahezu spiegelbildliche Vertiefungen durch mechanisches Herausarbeiten eingebracht wurden. Die Kanäle für das zu reinigende Medium 18 und das im Gegenstrom fließende Medium 19, das die Verunreinigungen aufnehmen soll, sind durch Ätzen hergestellt. Zwischen beiden Substratplättchen ist eine semipermeable Membran 17 festgeklemmt. Das Medium 18 wird durch einen kreisförmigen Kanal, der durch Bohren hergestellt wurde, mit der nachgeschalteten Verfahrensstufe verbunden.

Die Heizstufe 12 und die Kühlstufe 14 sind in ähnlicher Weise, wie im ersten Ausführungsbeispiel dargelegt, hergestellt worden. Die Reaktionsstufe 13 ist sinngemäß, wie im Ausführungsbeispiel für ein katalytisches Reaktionsgefäß beschrieben, ausgeführt.

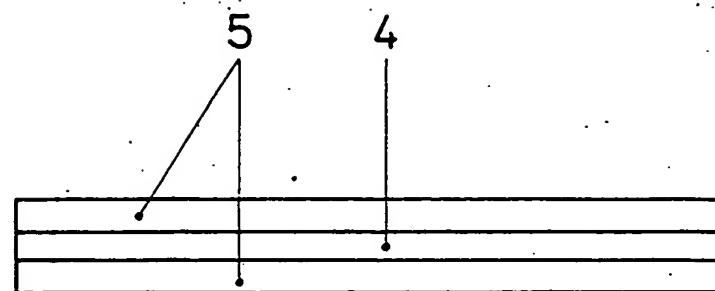


Fig. 1a

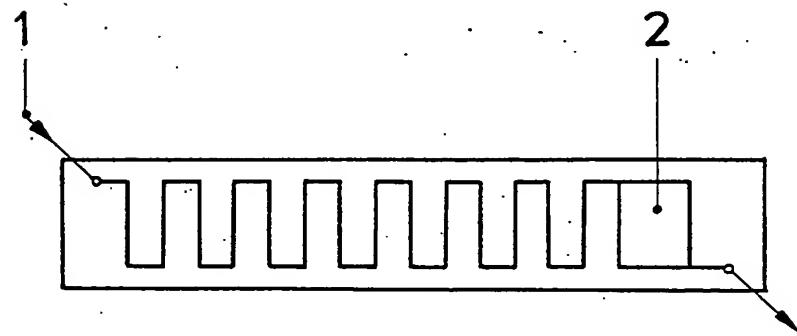


Fig. 1b

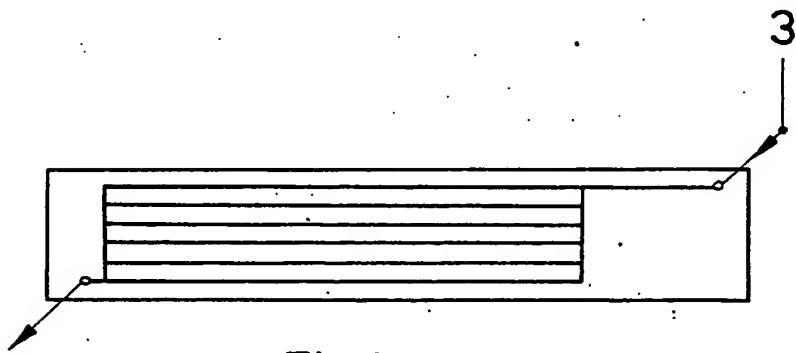


Fig. 1c

21.1.86. 316719

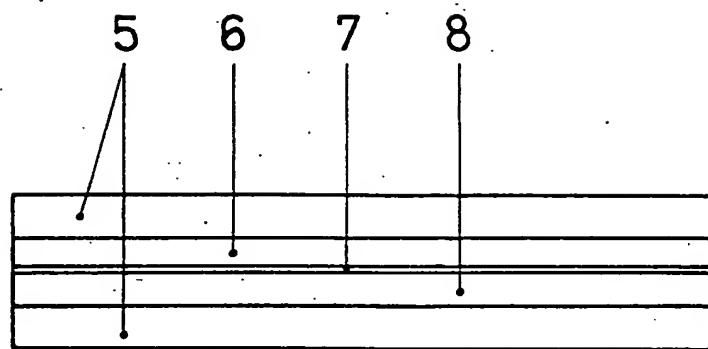


Fig. 2

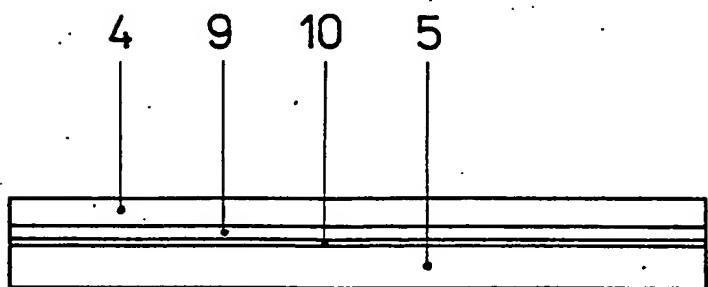


Fig. 3

21.1.86. 316719

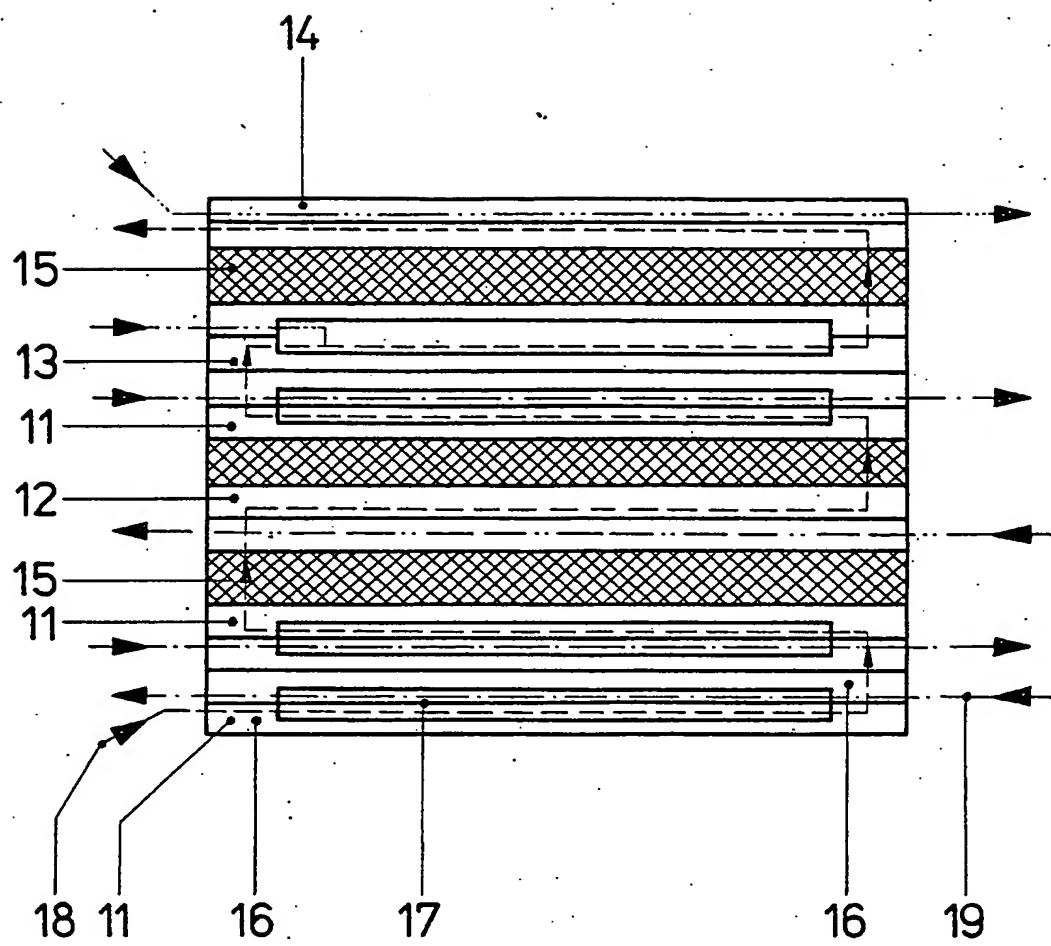


Fig. 4

246719